

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : **05-140476**
(43)Date of publication of application : **08.06.1993**

(51)Int.CI.

C09C 3/06
// C08K 9/06
C09C 3/12

(21)Application number : **03-336088**

(71)Applicant : **HARIMA CERAMIC CO LTD**

(22)Date of filing : **25.11.1991**

(72)Inventor : **KASHIWABARA TAKAYUKI**

(54) PRODUCTION OF INORGANIC PARTICLE USED AS FILLER IN RESIN

(57)Abstract:

PURPOSE: To obtain the subject particles free from agglomeration and excellent in dispersibility.

CONSTITUTION: Inorganic particles coated with a silicone oil are passed through a high-temperature flame to melt and form sphere. The inorganic particles, even if fine particles, are free from agglomeration, can be ejected very smoothly from a nozzle, and are formed into spheres while being kept in a state of fine particles. In addition, because of good dispersibility in a flame, the particles are wholly subjected to the heat of a flame so that the degree of sphericity is remarkably improved. The grinding of the particles for adjusting the particle size with the addition of a silicone oil results in the completion of the drying of a silicone oil in the grinding step; therefore, no drying step is necessary.

LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

JP5140476

Publication Title:

PRODUCTION OF INORGANIC PARTICLE USED AS FILLER IN RESIN

Abstract:

Abstract of JP5140476

PURPOSE:To obtain the subject particles free from agglomeration and excellent in dispersibility. CONSTITUTION:Inorganic particles coated with a silicone oil are passed through a high-temperature flame to melt and form sphere. The inorganic particles, even if fine particles, are free from agglomeration, can be ejected very smoothly from a nozzle, and are formed into spheres while being kept in a state of fine particles In addition, because of good dispersibility in a flame, the particles are wholly subjected to the heat of a flame so that the degree of sphericity is remarkably improved. The grinding of the particles for adjusting the particle size with the addition of a silicone oil results in the completion of the drying of a silicone oil in the grinding step; therefore, no drying step is necessary. Data supplied from the esp@cenet database - Worldwide

Courtesy of <http://v3.espacenet.com>

(19)日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平5-140476

(43)公開日 平成5年(1993)6月8日

(51)Int.Cl. ⁵	識別記号	序内整理番号	F 1	技術表示箇所
C 09 C 3/06	P B T	6904-4 J		
// C 08 K 9/06	K C Q	7167-4 J		
C 09 C 3/12	P C H	6904-4 J		

審査請求 未請求 請求項の数3(全5頁)

(21)出願番号 特願平3-336088	(71)出願人 000111683 ハリマセラミツク株式会社 兵庫県高砂市荒井町新浜1丁目3番1号
(22)出願日 平成3年(1991)11月25日	(72)発明者 柏原 孝行 兵庫県高砂市荒井町新浜1丁目3番1号ハ リマセラミツク株式会社内

(54)【発明の名称】樹脂充填用無機質粒子の製造方法

(57)【要約】

【目的】凝集もなく、分散性にすぐれた樹脂充填用無機質粒子を得る。

【構成】シリコーンオイルを表面に被覆させた無機質粒子を高温火炎中に通し、溶融球状化させる。これにより、微粒の無機質粒子であっても凝集もなく、ノズルからの噴出がきわめてスムーズに行われ、粒子は微粒の状態を保って球状化される。しかも、火炎中の分散性がよいことから、粒子は火炎熱をくまなく受けて、球状度が格段に向かう。また、粒子の粒度調整のための粉碎をシリコーンオイルを添加した状態で行うと、シリコーンオイルの乾燥が粉碎工程で完了し、新たに乾燥工程が必要でない。

【特許請求の範囲】

【請求項1】表面にシリコーンオイルを被覆させた無機質粒子を、高温火炎中に通すことを特徴とした、樹脂充填用無機質粒子の製造方法。

【請求項2】シリコーンオイルを添加した状態で粉碎した無機質粒子を、高温火炎中に通すことを特徴とした、樹脂充填用無機質粒子の製造方法。

【請求項3】シリコーンオイルを溶媒で稀釀させた請求項1または2記載の製造方法。

【発明の詳細な説明】

10

【0001】

【産業上の利用分野】本発明は、半導体封止用の樹脂に充填される無機質粒子の製造方法に関する。

【0002】

【従来の技術】半導体の封止に使用される樹脂は、電気絶縁性、耐熱性、機械的強度などを向上させるために、シリカ、アルミナなどの無機質粒子を充填している。従来、この無機質粒子は粉碎粒子が使用されている。しかし、粉碎粒子では粒子が角ばっているために、半導体表面やボンディングワイヤーが損傷しやすいため、流動性が悪いために十分な充填量が得られないなどの問題がある。そこで、粉碎粒子を一旦高温火炎中に通し、溶融球化させることができると提案されている。例えば特開昭59-59737号公報に見られるとおりである。

【0003】球化した粒子は半導体機構の損傷防止に効果的であり、しかも流動性に優れている。また、高温火炎中を通しての球化は、工業的生産性の面でも好ましい。

【0004】

【発明が解決しようとする課題】最近の半導体の急速な高集積化によって、従来よりさらに球化度が高く、かつ粒径の小さい樹脂充填用無機質粒子が望まれている。球化度が高くしかも粒径が小さい無機質粒子は、樹脂表面への露出が少なくなつて、半導体機構の損傷防止に好ましい。さらに、粒子径が小さいと分散性に優れることから、充填率が増し、樹脂の電気絶縁性、耐熱性および機械的強度が向上する。

【0005】しかし、無機質粒子は粒径が小さくなると凝集し、その状態で火炎中を通すと溶融一体化して、粒子径がかえって大きくなる。また、無機質粒子は凝集によって分散性が低下し、火炎中の粒子濃度が不均一となり、球化度に劣る。本発明は、高温火炎中を通して粒子の溶融球化を図る樹脂充填用無機質粒子の製造について、上記従来の欠点を解決することを目的としている。

【0006】

【課題を解決するための手段】本発明は、樹脂充填用無機質粒子の製造方法において、表面にシリコーンオイルを被覆させた無機質粒子を、高温火炎中に通すことを特徴とする。また、シリコーンオイルを添加した状態で粉

碎した無機質粒子を、高温火炎中に通すことを特徴とする。

【0007】シリコーンオイルは、従来から電機絶縁油、液压油、熱媒、潤滑油、撥水剤などに使用されている。本発明では、無機質粒子の表面をはじめシリコーンオイルで被覆させた後、高温火炎中に通す。シリコーンオイルがもつ撥水性のためか、粒子は粒径が小さくても凝集することなく、分散性にすぐれ、ノズルからの噴出はきわめてスムーズに行われる。また、多少の凝集が生じても強固なものではなく、ノズルからの噴出時に完全に分散する。その結果、粒子は一次粒子の状態で火炎熱を受け、球化度が格段に向上する。

【0008】シリコーンオイルを乾燥させない状態で粒子を火炎中に通すと、シリコーンオイルがもつ撥水性、分散性の効果が充分に發揮されない。そこで、表面をシリコーンオイルで被覆させた無機質粒子は、予め乾燥させておくことが好ましい。粒子の粒度調整は粉碎によつて行われる。この粉碎をシリコーンオイルを添加した状態で行うと、粉碎時に粒子間あるいは粒子と粉碎機器との間で生じる摩擦熱のためにシリコーンオイルの乾燥が粉碎工程で完了する。この方法では、シリコーンオイルの乾燥が必要な場合でも、新たに乾燥工程を必要としないという効果がある。

【0009】本発明で使用するシリコーンオイルの具体的な種類と添加量は特に限定されるものではない。例えば、メチルシリコーンオイル、メチルハイドロジエンシリコーンオイル、メチルフェニルシリコーンオイルなどである。これらのシリコーンオイルを溶媒で稀釀させて使用してもよい。溶媒の種類としては、例えば、イソブロピルアルコール、トリクロルエタン、イソプロパノール、メタノール、エタノール、トルエン、キシレンなどである。稀釀の割合は、重量割合でシリコーンオイル1に対して溶媒が例えば20以下とする。シリコーンオイルは稀釀せると、無機質粒子に対する混合被覆が容易になる。

【0010】無機質粒子に対するシリコーンオイルの被覆は、例えばはじめ粒度調整した無機質粒子にシリコーンオイルを外掛けで0.1~10wt%添加混合し、必要により、さらに乾燥することで行なう。シリコーンオイルの割合が0.1wt%未満では被覆の効果が認められない。10wt%を超えても効果は変わらず、しかもシリコーンオイルの使用量の増加でコスト高となる。

【0011】シリコーンオイルの添加を無機質粒子の粉碎工程で行う場合は、粉碎時の粒子間あるいは粒子と粉碎機器との間で生じる摩擦熱のために、シリコーンオイル被覆後の乾燥は必要としない。

【0012】無機質粒子の材質は、シリカ、アルミナ、マグネシアなどである。シリカの具体例としては、珪石、珪砂、水晶、溶融シリカ、合成シリカなどである。火炎処理前の粒径は、従来、平均1.0~7.0μm程度で

あるが、本発明では粒子の凝集が防止するために、平均 $10\text{ }\mu\text{m}$ 以下の例えば平均 $0\text{, }1\sim 1\text{ }\mu\text{m}$ といった超微粒子でも使用可能である。

【0013】本発明は、前記のようにしてシリコーンオイルを表面に被覆させた無機質粒子を使用し、後は常法どおり、LPG/酸素、水素/酸素などを燃料とした高温火炎中に連続的に供給し、溶融球状化させる。

【0014】こうして得られた溶融球状化粒子は、半導体封止用樹脂の充填剤の一部または全部に使用する。樹脂の種類としては、例えば、シリコン、エポキシ、フェノール、ポリエステル、ポリアミドなどの熱硬化性樹脂である。

【0015】

【実施例】以下、本発明の実施例とその比較例の試験結果を表1と表2に示す。各例は、いずれもLPG/酸素を燃料とした高温火炎(最高部約 $2\text{, }500^\circ\text{C}$)中に無機質粒子を連続的に供給し、溶融球状化させた。

【0016】実施例1~3;珪石をボールミル粉碎機によって微粉碎し、粒度調整した後、各例で示すシリコーンオイルを添加混合し、乾燥後、高温火炎中に通した。

実施例4~7;珪石を各例で示すシリコーンオイルを添加した状態でボールミル粉碎機によって微粉碎し、粒度調整した後、高温火炎中に通した。

比較例1;珪石をボールミル粉碎機によって微粉碎し、粒度調整した後、高温火炎中に通した。

【0017】実施例8~10;アルミナをボールミル粉碎機によって微粉碎し、粒度調整した後、各例で示すシリコーンオイルを添加混合し、乾燥後、高温火炎中に通した。

実施例11~14;アルミナを各例で示すシリコーンオイルを添加した状態でボールミル粉碎機によって微粉碎し、粒度調整した後、高温火炎中に通した。

比較例2;アルミナをボールミル粉碎機によって微粉碎し、粒度調整した後、高温火炎中に通した。

【0018】試験において分散度は、火炎に通す前の粒子について、ホソカワミクロン社製のパウダーテスターを用いて測定した。スパイラルフローは次の方法で測定した。すなわち、ノボラック型エポキシ樹脂〔東都化成(株)製・YDCN702P〕100部、硬化剤〔大日本インキ化学工業(株)製、バーカム2131〕50部、トリフェニルホスフェート〔硬化促進剤・昭和エテール(株)製〕2部、カルナウバワックス〔野田ワックス(株)製〕2部、カップリング剤〔信越化学工業(株)製〕3部、各例で得られた無機質粒子350部の混合物を 90°C の加熱下で混練し、冷却後、粉碎した。

この粉碎物を成形し、この成形時の流動性をEMMI-1-66に準じ、 170°C 下でのスパイラルフロー値を求めた。

10

20

30

40

【0019】

【表1】

製造条件	本発明実施例							比較例
	1	2	3	4	5	6	7	
珪石	100	100	100	(1)	100	100	100	100
wt%	(0.3)	(5)			(0.1)	(2)		(5)
メチルシリコーンオイル								
メチルフェニルシリコーンオイル								
メチルシリコーンオイル								
シリコーンオイルの添加時期	粉碎後	粉碎後	粉碎後	粉碎後	粉碎時	粉碎時	粉碎時	—
乾燥処理($300^\circ\text{C} \times 4\text{時間}$)	有	有	有	—	—	—	—	—
分散度	(%)	75	84	80	71	70	74	88
無機質粒子の 平均粒径(μm)	高溫火炎に通す前	15.2	15.2	15.2	15.8	15.1	15.2	15.4
	"通した後	18.5	16.9	17.1	18.2	18.2	18.8	17.6
スパイラルフロー	(cm)	102.3	105.5	104.5	100.2	98.5	99.2	104.1

※()内の数値は、外掛けwt%。

【0020】

【表2】

製造条件	シリコーンオイルの添加時期	本発明実施例						比較例 2
		8	9	10	11	12	13	
wt %	アルミナ メチルシリコーンオイル メチルフェニルシリコーンオイル メチルシリコーンオイル	100 (0.5) (5)	100 (1)	100 -	100 -	100 (0.2)	100 (1)	100 (5)
乾燥処理 (300°C × 4時間)	粉碎後	粉碎後	粉碎後	粉碎後	粉碎時	粉碎時	粉碎時	-
分散度 (%)	有	有	有	-	-	-	-	-
無機質粒子	62	75	65	65	66	70	70	35
平均粒径 (μm)	17.2	16.1	16.8	17.0	17.1	16.0	16.2	20.1
スパイラルフロー	13.7	13.7	13.2	13.2	13.5	13.1	13.1	13.7
cm	112.1	11.2	118.0	110.5	112.6	120.1	121.5	95.4

※ ()内の数値は、外掛けwt%。

本発明の実施例で使用する粒子はシリコーンオイルの被覆によって分散性が大きいことから、凝集もなく、微粒状態を保って球状化される。微粒でしかも球状度が高いためか、この粒子を充填した樹脂のスパイラルフロー値も高い。

【0021】シリコーンオイルを添加した状態で粉碎し 50 較例1, 2は、分散性が小さく、凝集によって溶融球状

た粒子であっても、同様の効果が得られている。粉碎時にシリコーンオイルを添加することで、粒子の乾燥が粉碎と同じに行われ、シリコーンオイルを添加していても乾燥工程を必要としないために、その分、製造コストを下げることができる。シリコーンオイルを使用しない比

後の粒子径も大きい。

【0022】

【発明の効果】以上のとおり、本発明によれば微粒の無機質粒子であっても凝集もなく、ノズルからの噴出がきわめてスムーズに行われ、粒子は微粒の状態を保って球状化される。しかも火炎中の分散性がよいことから、粒子は火炎熱をくまなく受けて、球状度が格段に向上升する。半導体封止用の樹脂に必要な電気絶縁性、耐熱性、機械的強度、半導体機構の損傷防止には、無機質粒子の充填剤は球状度が高く、しかも、より微粒であることが 10

好ましい。本発明によれば、従来では凝集による分散性の低下で製造が困難であった微粒で球状度の高い粒子を得ることが可能となる。今後、ますます高集積化が進む半導体の製造技術の一環として、本発明の役割はきわめて大きい。シリコーンオイルで被覆させた無機質粒子は、予め乾燥させておくことが好ましいが、粒子の粒度調整のための粉碎をシリコーンオイルを添加した状態で行うと、シリコーンオイルの乾燥が粉碎工程で完了し、新たに乾燥工程を設ける必要がないために、製造コストを下げることができる。